



DOI:10.13364/j.issn.1672-6510.20150062

天津入海河流沉积物中多溴联苯醚的分布特征

宋春铮, 张彤, 高一楠, 田胜艳

(天津市海洋资源与化学重点实验室, 天津科技大学海洋与环境学院, 天津 300457)

摘要: 对天津入海河流沉积物中多溴联苯醚 (PBDEs) 进行调查研究, 以了解其中 PBDEs 的污染水平与分布状况。结果表明: 各入海河流沉积物中 Σ (PBDEs) 的含量为 6.18 ~ 42.79 ng/g (相对于干质量), 平均含量为 14.72 ng/g (相对于干质量), 其中十溴联苯醚 BDE-209 为主要同系物, 占 Σ (PBDEs) 的比例大于 94%; 污染主要来自附近工业废水排放; 与世界其他地区沉积物中 PBDEs 含量相比, 该地区 PBDEs 属于低污染水平。

关键词: 多溴联苯醚; 沉积物; 河流; 分布特征

中图分类号: X522 文献标志码: A 文章编号: 1672-6510(2016)02-0045-06

Distribution of Polybrominated Diphenyl Ethers (PBDEs) in River Sediments Entering the Sea in Tianjin Area

SONG Chunzheng, ZHANG Tong, GAO Yanan, TIAN Shengyan

(Tianjin Key Laboratory of Marine Resources and Chemistry, College of Marine and Environmental Sciences, Tianjin University of Science & Technology, Tianjin 300457, China)

Abstract: Sediments were collected from the rivers entering the sea in Tianjin area to investigate polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) concentrations and distribution. The total concentrations of PBDEs in the sediments ranged from 6.18 ~ 42.79 ng/g (dry weight) with an average content of 14.72 ng/g (dry weight), in which BDE-209 (Deca-BDEs) was the predominant congener and accounted for more than 94%. The PBDEs mainly come from industrial wastewater discharged nearby. Compared with the reported PBDEs pollution in other areas and countries, the PBDE levels belong to low pollution according to this study.

Key words: PBDEs; sediment; rivers; distribution characters

渤海是一个半封闭型的内陆海, 水交换能力差, 污染物向外海输运速度慢。随着环渤海经济圈的发展其污染状况不断恶化, 渤海湾的中心城市天津已经成为继珠江三角洲和长江三角洲之后的中国第三大电子产品生产中心, 由此导致渤海西部海域沉积物中多溴联苯醚 (PBDEs) 污染较严重^[1-2]。PBDEs 是一种高效且价格相对低廉的溴代阻燃剂, 被广泛应用于电子和家居等商业产品中。PBDEs 属于添加型的阻燃剂, 由于没有化学键束缚, 很容易从产品中释放进入环境。PBDEs 水溶性低、亲脂性强 ($\log K_{ow}$ 为 4 ~ 10), 化学结构稳定, 难以分解, 具有持久性、生物蓄积性、长距离迁移性和生物毒性, 是一类新型的持久

性有机污染物, 其存在对人类健康和生态环境产生了威胁^[3]。较强的疏水性使得 PBDEs 很容易与颗粒物结合, 大气中的 PBDEs 主要是以与颗粒物结合的形式存在, 并通过大气传输和干/湿沉降进入土壤和水体。水体中的 PBDEs 主要吸附在悬浮颗粒物上 (矿物、生物碎屑、胶体物质等), 最终进入沉积物, 因此沉积物是 PBDEs 的一个重要归宿。

目前, 在我国珠江流域、长江流域、珠江口、长江口、南海、东海、渤海莱州湾、辽东湾等地区的沉积物中都检测到 PBDEs^[4-13], 其中珠江流域、珠江口和莱州湾等局部地区 PBDEs 污染居世界高污染水平。有研究发现, 天津近海沉积物中 PBDEs 污染水平在渤

收稿日期: 2015-05-14; 修回日期: 2015-06-28

基金项目: 国家自然科学基金资助项目 (41303070); 中国博士后科学基金资助项目 (2013T60256)

作者简介: 宋春铮 (1989—), 男, 河北唐山人, 硕士研究生; 通信作者: 田胜艳, 高级工程师, tiansy@tust.ed.cn.

海沉积物中是较高的^[2]. 天津入海河流沉积物中关于 PBDEs 的研究报道主要集中在海河^[9]与大沽排污河^[14], 而对其他河流的报道相对较少, 因此不能全面了解通过河流运输可能对渤海造成 PBDEs 污染的潜在风险. 针对这个问题, 本研究对天津境内各入海河流沉积物中 PBDEs 的污染状况进行调查, 旨在了解入海河流沉积物中 PBDEs 的污染水平和分布状况, 为合理地治理环境中 PBDEs 污染提供便利, 以降低其生态环境风险.

1 材料与方法

1.1 试剂与标样

正己烷、丙酮、二氯甲烷, 色谱级, 天津康科德科技有限公司; 浓硫酸, 化学纯, 天津市化学试剂五厂; 无水硫酸钠、层析氧化铝, 天津科密欧化学试剂有限公司; 工业液氮, 天津阳光气体有限公司; 玻璃纤维, 成都市科龙化工试剂厂.

混合标样 BDE-CSM (BDE-28、BDE-47、BDE-99、BDE-100、BDE-153、BDE-154、BDE-183、BDE-209, IUPAC 命名法) 和单标 (BDE-77 和 BDE-118) 为美国 AccuStandard 公司产品, 购自百灵威公司.

1.2 样品的采集

沉积物样品于 2009 年夏季, 用表面采泥器分别采自永定新河、海河、大沽排污河、独流减河、青静黄排水渠、子牙新河、北排水河, 共计 11 个采样站位 (见图 1). 样品采集后装于洁净的玻璃瓶内, 低温保存, 带回实验室后进一步处理.

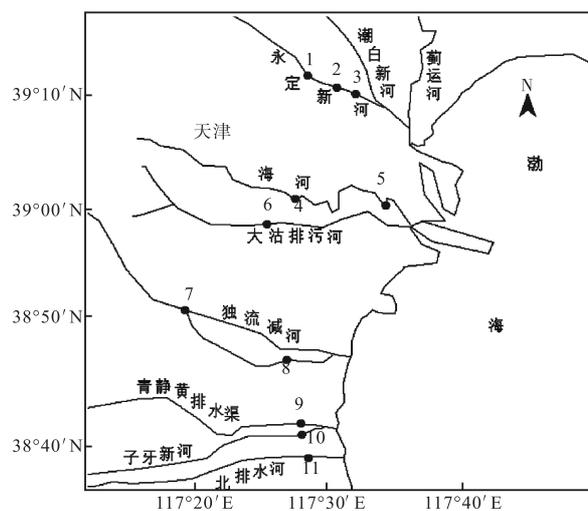


图 1 站位分布图

Fig. 1 Locations of sampling stations

1.3 样品处理

实验室内对样品进行冷冻干燥、研磨、过 80 目筛. 称取过筛后的沉积物样品 15 g, 加入铜粉 (除硫) 1 g 以及一定量的回收率指示物 BDE-77, 用体积比为 1:1 的正己烷/丙酮混合溶剂作为萃取剂, 索氏萃取 48 h. 萃取液经过旋转蒸发浓缩, 并将溶剂替换为正己烷, 定容至 1 mL, 转移至洁净试管内, 加入浓硫酸脱脂, 然后离心, 收集有机相; 用正己烷洗涤无机相, 再离心收集有机相, 重复 2 次; 合并 3 次收集的有机相, 氮吹浓缩至 1 mL, 氧化铝净化柱处理. 氧化铝净化柱的制备方法为: 在内径为 1 cm 玻璃柱内, 由底部向上依次装入经过丙酮超声洗涤的玻璃纤维、400 °C 老化 2 h 的氧化铝粉末、丙酮超声洗涤过的无水硫酸钠. 先用正己烷淋洗净化柱, 加入样品, 再用体积比为 1:1 的二氯甲烷/正己烷混合溶剂洗脱, 收集洗脱液, 氮吹浓缩至 100 μ L, 加入一定量的内标物 BDE-118, 使用气相质谱联用仪 (GC/MS) 进行测定.

1.4 仪器分析

分析仪器为 Agilent 7890A 型气相色谱与 Agilent 5975C 型质谱联用仪.

色谱条件: 进样口温度为 280 °C, 载气为高纯度的氦气, 柱流量为 1 mL/min, 无分流进样, 自动进样量为 1 μ L; 采用 DB-5 MS 毛细管柱 (15 m \times 250 μ m, 0.25 μ m) 进行分析. 升温程序: 初始温度 90 °C, 保持 2 min, 然后以 25 °C/min 升到 210 °C, 保持 1 min, 再以 10 °C/min 升到 275 °C, 保持 10 min, 最后以 25 °C/min 升到 310 °C, 保持 2 min.

质谱条件: 负化学电离源 (negative chemical ionization, NCI); 接口温度为 280 °C, 离子源温度为 250 °C, 四极杆温度为 150 °C. 数据采集采用选择离子扫描模式 (selected ion monitoring, SIM): 三溴至九溴联苯醚选用特征离子 m/z 为 79 和 81, 十溴联苯醚 (BDE-209) 选用特征离子 m/z 为 79、81、486.7 和 488.7.

1.5 质量保证、质量控制(QA/QC)

为了验证方法的准确性以及分析基质对目标化合物的影响, 分别进行了空白加标和基质加标, 空白加标和基质加标的回收率分别为 84% ~ 106% 和 71% ~ 105%.

为了降低环境背景和人为因素的干扰, 每批 (6 个) 样品中加一个方法空白, 方法空白的处理为不加沉积物, 其余分析步骤与待测样品完全相同. 每批样品中回收率指示物 BDE-77 的回收率 (包括空白) 介

于 86% ~ 119%。同时为了保证实验结果的重现性, 每个采样点的样品进行 3 个平行样品分析, 平行样的相对标准偏差小于 10%。

1.6 数据分析

运用统计软件 SPSS 19.0 对 PBDEs 同系物进行相关性分析。相关分析前先对数据进行 K-S 检验以确定数据是否符合正态分布, 如果符合再进行 Pearson 相关分析。

2 结果

2.1 沉积物中多溴联苯醚的含量

天津入海河流沉积物中 PBDEs 的含量见表 1。本研究检测的 8 种 PBDEs 目标同系物 (BDE-28、BDE-47、BDE-99、BDE-100、BDE-153、BDE-154、BDE-183、BDE-209) 在 7 条调查河流中都有检出, Σ (PBDEs) 的含量为 6.18 ~ 42.79 ng/g (相对于干质

量, 下同), 平均值为 14.72 ng/g。各河流沉积物中 Σ (PBDEs) 含量不同, 其中大沽排污河沉积物中 Σ (PBDEs) 含量最高, 平均值为 42.79 ng/g, 远高于其他河流沉积物中 Σ (PBDEs) 含量。各河流沉积物中 Σ (PBDEs) 含量从高到低的顺序为: 大沽排污河 > 北排水河 > 青静黄排水渠 > 海河 > 独流减河 > 子牙新河 > 永定新河。

2.2 沉积物中多溴联苯醚的同系物组成

检测的 8 种 PBDEs 目标同系物中, BDE-209 的含量最高, 其含量为 5.98 ~ 41.66 ng/g, 在所有检测站点中 BDE-209 含量占 Σ (PBDEs) 的比例均大于 94%。其他 7 种低溴代 PBDEs 同系物 (Σ_7 (PBDEs)), 包括 BDE-28、BDE-47、BDE-99、BDE-100、BDE-153、BDE-154、BDE-183 含量相对较低, 含量为 0.18 ~ 1.13 ng/g。各河流沉积物中低溴代同系物组成如图 2 所示。

表 1 天津入海河流沉积物中 PBDEs 的含量

Tab. 1 PBDE concentrations in river sediment emptying into the sea in Tianjin area

物质	PBDEs 含量/(ng·g ⁻¹)						
	永定新河	海河	大沽排污河	独流减河	青静黄排水渠	子牙新河	北排水河
BDE-28	0.04	nd	0.03	0.05	nd	0.04	0.03
BDE-47	0.04	0.11	0.38	0.05	0.05	0.03	0.04
BDE-99	0.02	0.24	0.53	0.09	0.04	0.03	0.07
BDE-100	0.02	0.05	0.08	0.03	0.02	0.04	0.01
BDE-153	0.02	0.06	0.07	0.05	0.02	0.03	0.02
BDE-154	0.01	0.04	0.04	0.02	0.01	0.01	0.01
BDE-183	0.05	nd	nd	0.12	0.04	0.05	0.07
BDE-209	5.98	9.49	41.66	8.34	10.08	6.19	18.41
Σ (PBDEs)	6.18	9.99	42.79	8.75	10.26	6.42	18.66

注: nd 代表未检出; 各河流沉积物中 PBDEs 含量为不同采样点的平均值。

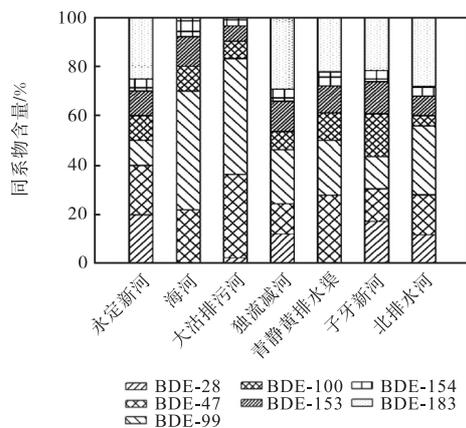


图 2 天津入海河流沉积物中 Σ_7 (PBDEs) 同系物组成

Fig. 2 Profile of Σ_7 (PBDEs) in river sediment emptying into the sea in Tianjin area

由图 2 可见, BDE-47、BDE-99、BDE-183 为主要

的低溴代同系物, 它们在 Σ_7 (PBDEs) 中的平均比例分别为 20.66%、27.16% 和 18.03%, 其次依次为 BDE-153 (10.36%)、BDE-100 (9.56%)、BDE-28 (9.18%)、BDE-154 (5.05%)。不同河流沉积物中低溴代同系物组成差异很大, 其中海河和大沽排污沉积物中 BDE-99 占 Σ_7 (PBDEs) 的比例远高于其他几条河流, 而其他几条河流沉积物中 BDE-183 占 Σ_7 (PBDEs) 的比例高于海河和大沽排污河。

3 讨论

3.1 天津入海河流沉积物中 PBDEs 的分布状况与来源分析

调查结果显示, 大沽排污河沉积物中 Σ (PBDEs) 含量最高, 可能与大沽排污河是天津主要的排污河道

有关,沿河有大量工业废水注入其中.有研究报道大沽排污河日排污量达 80 万 t^[15].由于 PBDEs 亲脂疏水的特性,由工业污水排入河流后,极易被悬浮颗粒吸附而进入到沉积相中.随着外来污染源不断地输入,河流沉积物中 PBDEs 含量也在持续增加.2005 年吕建霞等^[14]对天津大沽排污河沉积物 PBDEs 含量进行调查,测得表层沉积物 Σ (PBDEs) 浓度远低于本研究 42.79 ng/g (2009 年),由此可知近些年大沽排污河沉积物中 PBDEs 含量在持续增加.与大沽排污河相比,本次调查研究的其他 6 条河流沉积物中 Σ (PBDEs) 含量较低,这可能与河流周围工业污染源较少或工业废水排放量较小相关.

沉积物中 PBDEs 的同系物组成与其来源密切相关^[16].由同系物组成分析结果可知,天津入海河流沉积物中 BDE-209 是主要同系物,这与 PBDE 阻燃剂产品的使用有关.商业 PBDEs 产品主要有 3 种:五溴商业产品(Penta-BDE)、八溴商业产品(Octa-BDE)及十溴商业产品(Deca-BDE),BDE-209 是 Deca-BDE 产品的主要成分(含量为 97%~98%^[17]).国际上一直没有对 Deca-BDE 产品进行明文规定的禁止使用,最近几年才被其他溴代阻燃剂产品逐渐替代,而且亚洲(包括中国)是 Deca-BDE 产品的生产基地,因此中国局部地区沉积物中 BDE-209 污染居世界最高水平^[4].关于中国河流及近海沉积物中 PBDEs 的研究报道均发现 BDE-209 是主要同系物.对于其余 7 种低溴代 PBDEs 同系物,除了大沽排污河和海河

沉积物中的 BDE-47 和 BDE-99 外,含量均非常低,可能来源于高溴代同系物的降解转化,尤其是厌氧条件下由于生物脱溴所致^[14];而对于大沽排污河和海河沉积物中的 BDE-47 和 BDE-99,还可能来源于 Penta-BDE 产品的使用,因为这两种同系物是 Penta-BDE 产品中的主要物质.Penta-BDE 和 Octa-BDE 在中国基本没有生产,其污染源主要来自大量进口电子垃圾拆废,以及进口家居产品的使用.鉴于 PBDEs 的生物毒性,欧美主要国家先后禁止了 Penta-BDE 和 Octa-BDE 产品的生产和使用,并且联合国环境规划署于 2009 年将 Penta-BDEs、Hexa-BDEs 和 Hepta-BDEs 等 9 种有毒物质列入《关于持久性有机污染物的斯德哥尔摩公约》^[18],自此,由生产和使用引起的环境中低溴代 PBDEs 的输入基本停止.因此各调查河流中低溴代 PBDEs 含量都非常低.

对检测的 8 种 PBDEs 同系物进行相关性分析,结果见表 2.从表 2 中可知:BDE-47、BDE-99、BDE-100、BDE-153、BDE-154 之间相关性显著或极显著,说明它们可能来自相同的溴代阻燃剂产品 Penta-BDE;BDE-209 与 BDE-28、BDE-100、BDE-153、BDE-154、BDE-183 相关性不显著,说明它们来源不同;BDE-209 与 BDE-47、BDE-99 之间的相关性极显著,表明这两种同系物可能主要来源于 BDE-209 的脱溴降解,有学者研究发现在自然条件下,通过紫外或太阳光照射^[19]、生物降解^[20]等途径,BDE-209 可以脱溴降解为低溴联苯醚.

表 2 多溴联苯醚同系物之间的相关性
Tab. 2 Correlation between PBDE congeners

物质	BDE-28	BDE-47	BDE-99	BDE-100	BDE-153	BDE-154	BDE-183	BDE-209
BDE-28	1							
BDE-47	-0.074	1						
BDE-99	-0.145	0.975**	1					
BDE-100	-0.066	0.880**	0.903**	1				
BDE-153	-0.051	0.761*	0.857*	0.883**	1			
BDE-154	-0.298	0.766*	0.878**	0.845*	0.947**	1		
BDE-183	0.638	-0.595	-0.613	-0.624	-0.385	-0.596	1	
BDE-209	-0.008	0.925**	0.882**	0.680	0.565	0.569	-0.447	1

注: ** $P \leq 0.01$, 表示相关性极显著.

3.2 与其他地区沉积物中多溴联苯醚污染水平比较

天津入海河流沉积物中 Σ_7 (PBDEs) 和 BDE-209 含量分别为 0.18~1.13 ng/g 和 5.98~41.66 ng/g, 平均含量分别为 0.41 ng/g 和 14.31 ng/g, 与国内外不同地区相比可以看出(表 3):天津入海河流沉积物中 Σ (PBDEs) 污染处于低水平, 仅高于挪威 Alesund 湖和中国南海北部区域;其 Σ_7 (PBDEs) 污染与亚洲日

本 Tokyo 湾、韩国 Busan 湾、澳大利亚 Sydney 河口和中国国内其他地区处于同一水平, 而要远低于欧美国家, 这是因为欧美国家主要以低溴代 PBDEs 产品使用为主, 而亚洲国家(包括中国)主要以高溴代 PBDEs 即十溴联苯醚产品(BDE-209)为主^[13];以十溴联苯醚产品生产中心——亚洲地区之间相互比较, 本研究 BDE-209 污染与日本 Tokyo 湾、中国长江三

角洲和上海入海河流持平,而远低于韩国 Busan 湾、中国珠江河口与环渤海地区。

表 3 不同地区沉积物中的多溴联苯醚的含量
Tab. 3 Concentrations of PBDEs in the sediments from different areas

研究区域	调查时间/年	含量/(ng·g ⁻¹)		数据来源
		Σ ₇ (PBDEs)	BDE-209	
美国 San Francisco 河口	2002	nd ~ 212	nd	文献[21]
美国 Hadley 湖	2004	5.2 ~ 37.6 (13.9)	19 ~ 36 (28.8)	文献[22]
英国 Tees 河口	1999	1.3 ~ 1 271	0.6 ~ 339	文献[23]
英国 Clyde 河口	2002	1 ~ 307	1 ~ 2 337	文献[24]
荷兰 Scheldt 河口	2003	14 ~ 22	240 ~ 1 650	文献[25]
西班牙 Cinca 河	2004	0.4 ~ 34.1	2.1 ~ 39.9	文献[26]
挪威 Alesund 湖	2006	0.056 ~ 0.6 (0.25)	—	文献[27]
澳大利亚 Sydney 河口	2014	0.65 ~ 2.5 (1.3)	21 ~ 65 (42)	文献[28]
日本 Tokyo 湾	2002	0.05 ~ 3.6	0.89 ~ 85	文献[29]
韩国 Busan 湾	2003	(1.8)	14 ~ 2 248 (283)	文献[30]
中国珠江河口及南海	2005	0.04 ~ 94.7	0.4 ~ 7 340	文献[4]
中国珠江三角洲	2010	1.54 ~ 94.8 (15.4)	14.4 ~ 588 (136)	文献[11]
中国长江三角洲	2005	nd ~ 0.55	0.16 ~ 94.6	文献[5]
中国上海入海河流	2013	0.231 ~ 119 (7.2)	nd ~ 189 (20.4)	文献[13]
中国南海北部	2005	0.04 ~ 4.5 (0.46)	0.41 ~ 9.1 (2.7)	文献[7]
中国环渤海	2008	0.047 ~ 5.24	0.3 ~ 2 776.5	文献[2]
中国天津入海河流	2009	0.18 ~ 1.13 (0.41)	5.98 ~ 41.66 (14.31)	本研究

注: nd 代表未检出; “—” 代表无相关数据; 括号内数值为平均含量。

4 结 论

PBDEs 在天津入海河流沉积物中都有检出且各河流含量存在一定程度的差异性,其中天津大沽排污河含量最高(42.79 ng/g),永定新河最低(6.18 ng/g);十溴联苯醚(BDE-209)是最主要污染物,在各河流沉积物 Σ(PBDEs)中占有较高的比例(大于 94%);PBDEs 污染主要来自附近工业废水的排放,与世界其他地区沉积物相比,本研究区域 PBDEs 污染处于低水平。

参考文献:

- [1] Pan X H, Tang J H, Li J, et al. Levels and distributions of PBDEs and PCBs in sediments of the Bohai Sea, North China [J]. Journal of Environmental Monitoring, 2010, 12(6): 1234–1241.
- [2] 林忠胜, 马新东, 张庆华, 等. 环渤海沉积物中多溴联苯醚(PBDEs)的研究[J]. 海洋环境科学, 2008, 27(S2): 24–27.
- [3] Ross P S, Couillard C M, Ikononou M G, et al. Large and growing environmental reservoirs of Deca-BDE present an emerging health risk for fish and marine mammals[J]. Marine Pollution Bulletin, 2009, 58(1): 7–10.
- [4] Mai B X, Chen S J, Luo X J, et al. Distribution of polybrominated diphenyl ethers in sediments of the Pearl River Delta and adjacent South China Sea[J]. Environmental Science & Technology, 2005, 39(10): 3521–3527.
- [5] Chen S J, Gao X J, Mai B X, et al. Polybrominated diphenyl ethers in surface sediments of the Yangtze River Delta: Levels, distribution and potential hydrodynamic influence[J]. Environmental Pollution, 2006, 144(3): 951–957.
- [6] Wang Z, Ma X, Lin Z, et al. Congener specific distributions of polybrominated diphenyl ethers(PBDEs) in sediment and mussel(Mytilus edulis) of the Bo Sea, China [J]. Chemosphere, 2009, 74(7): 896–901.
- [7] 陈社军, 麦碧娴, 曾永平, 等. 珠江三角洲及南海北部海域表层沉积物中多溴联苯醚的分布特征[J]. 环境科学学报, 2005, 25(9): 1265–1271.
- [8] 杨永亮, 潘静, 李悦, 等. 青岛近岸沉积物中持久性有机污染物多氯萘和多溴联苯醚[J]. 科学通报, 2003, 48(21): 2244–2251.
- [9] 吕杨, 王立宁, 黄俊, 等. 海河渤海湾地区沉积物, 鱼体样品中多溴联苯醚的水平与分布[J]. 环境污染与防治, 2007, 29(9): 652–655.
- [10] 金军, 王英, 刘伟志, 等. 莱州湾地区土壤及底泥中多溴联苯醚水平及其分布[J]. 环境科学学报, 2008, 28(7): 1463–1468.

- [11] 路风辉,陈满英,陈纪文,等. 珠江三角洲沉积物钻孔中多溴联苯醚的垂直变化规律研究[J]. 环境科学学报,2014,34(9):2362-2366.
- [12] Chen S J, Feng A H, He M J, et al. Current levels and composition profiles of PBDEs and alternative flame retardants in surface sediments from the Pearl River Delta, southern China: Comparison with historical data[J]. Science of The Total Environment, 2013, 444: 205-211.
- [13] Wang X T, Chen L, Wang X K, et al. Occurrence, profiles, and ecological risks of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in river sediments of Shanghai, China [J]. Chemosphere, 2015, 133: 22-30.
- [14] 吕建霞,王亚韡,张庆华,等. 天津大沽排污河河口沉积物多溴联苯醚,有机氯农药和重金属的污染趋势[J]. 科学通报,2007,52(3):277-282.
- [15] 郝智能,胡鹏,于泳,等. 天津大沽排水河沉积物典型持久性有机污染物的分布特征与来源解析[J]. 农业环境科学学报,2011,30(10):2106-2112.
- [16] 陈宣宇,薛南冬,张石磊,等. 废旧电器拆解区河流沉积物中多溴联苯醚(PBDEs)的污染特征与生态风险[J]. 环境科学,2014,35(10):3731-3739.
- [17] La Guardia M J, Hale R C, Harvey E. Detailed polybrominated diphenyl ether (PBDE) congener composition of the widely used penta-, octa-, and deca-PBDE technical flame-retardant mixtures[J]. Environmental Science & Technology, 2006, 40(20): 6247-6254.
- [18] Qiu X, Zhu T, Hu J. Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) and other flame retardants in the atmosphere and water from Taihu Lake, East China[J]. Chemosphere, 2010, 80(10): 1207-1212.
- [19] Stapleton H M, Dodder N G. Photodegradation of decabromodiphenyl ether in house dust by natural sunlight[J]. Environmental Toxicology and Chemistry, 2008, 27(2): 306-312.
- [20] Stapleton H M, Brazil B, Holbrook R D, et al. In vivo and in vitro debromination of decabromodiphenyl ether (BDE 209) by juvenile rainbow trout and common carp[J]. Environmental Science & Technology, 2006, 40(15): 4653-4658.
- [21] Oros D R, Hoover D, Rodigari F, et al. Levels and distribution of polybrominated diphenyl ethers in water, surface sediments, and bivalves from the San Francisco Estuary[J]. Environmental Science & Technology, 2005, 39(1): 33-41.
- [22] Song W L, Ford J C, Li A, et al. Polybrominated diphenyl ethers in the sediments of the Great Lakes. 1. Lake Superior[J]. Environmental Science & Technology, 2004, 38(12): 3286-3293.
- [23] Allchin C R, Law R J, Morris S. Polybrominated diphenylethers in sediments and biota downstream of potential sources in the UK[J]. Environmental Pollution, 1999, 105(2): 197-207.
- [24] Vane C H, Ma Y J, Chen S J, et al. Increasing polybrominated diphenyl ether (PBDE) contamination in sediment cores from the inner Clyde Estuary, UK[J]. Environmental Geochemistry and Health, 2010, 32(1): 13-21.
- [25] de Boer J, Wester P G, van der Horst A, et al. Polybrominated diphenyl ethers in influents, suspended particulate matter, sediments, sewage treatment plant and effluents and biota from the Netherlands[J]. Environmental Pollution, 2003, 122(1): 63-74.
- [26] Eljarrat E, de la Cal A, Raldua D, et al. Occurrence and bioavailability of polybrominated diphenyl ethers and hexabromocyclododecane in sediment and fish from the Cinca River, a tributary of the Ebro River (Spain) [J]. Environmental Science & Technology, 2004, 38(9): 2603-2608.
- [27] Jiao L, Zheng G J, Minh T B, et al. Persistent toxic substances in remote lake and coastal sediments from Svalbard, Norwegian Arctic: Levels, sources and fluxes[J]. Environmental Pollution, 2009, 157(4): 1342-1351.
- [28] Drage D, Mueller J F, Birch G, et al. Historical trends of PBDEs and HBCDs in sediment cores from Sydney estuary, Australia[J]. Science of the Total Environment, 2015, 512/513: 177-184.
- [29] Minh N H, Isobe T, Ueno D, et al. Spatial distribution and vertical profile of polybrominated diphenyl ethers and hexabromocyclododecanes in sediment core from Tokyo Bay, Japan[J]. Environmental Pollution, 2007, 148(2): 409-417.
- [30] Moon H B, Kannan K, Choi M, et al. Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in marine sediments from industrialized bays of Korea[J]. Marine Pollution Bulletin, 2007, 54(9): 1402-1412.

责任编辑:周建军